

のアルキレン基、炭素数7～9のフェニルアルキレン基、炭素数5～8のシクロアルキレン基、炭素数1～4のアルキル基で置換された炭素数5～8のシクロアルキレン基、フェニレン基、炭素数1～9のアルキル基で置換されたフェニレン基を示し、R1とR2が芳香環のいずれかの位置と結合し環を形成していてもよい。)から選ばれる少なくとも一種を含有することを特徴とするジアセタール組成物。

【請求項2】一般式(2)で表されるスルホンアミド化合物の配合量が、ジアセタール組成物100重量部に対して、0.4～20重量部である請求項1記載のジアセタール組成物。

【請求項3】請求項1記載のジアセタール組成物を含有することを特徴とするポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項4】請求項2記載のジアセタール組成物を含有することを特徴とするポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項5】ポリオレフィン系樹脂100重量部に対して、請求項1記載のジアセタール組成物を0.05～5重量部含有することを特徴とするポリオレフィン系樹脂組成物。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、ジアセタール類及びスルホンアミド化合物から選ばれる一種を含有してなるジアセタール組成物の融点を低下させることを特徴とするジアセタール組成物に関する。更に本発明は、該ジアセタール組成物を含有してなるポリオレフィン系樹脂組成物にも関する。

##### 【0002】

#### 【従来の技術】

近年、ポリオレフィン系樹脂、特にポリプロピレン樹脂に対する透明化剤として、ジアセタール化合物が多用されている。これらのジアセタール化合物は、ポリオレフィン系樹脂に溶解して、初めてその機能である透明性を樹脂に付与できるものである。

しかし、一般にジアセタール類の融点が高いため、不溶解部分が白点となり、樹脂の商品価値を損なうというトラブルも発生しやすい。

ジアセタール類の融点以上の高温で樹脂に溶解させる方法もあるが、ジアセタール類は長時間、高温下で取り扱われると熱分解を生じ、異臭を発生するため好ましくない。

特開平6-145431号公報には、ジアセタール類を非常に細かい粒子にして、樹脂中への分散性を高める方法が記載されているが、ジアセタール類を非常に細かい粒子にするためには、特殊な粉碎機を必要とする上に、粉塵による作業  
者への悪影響が懸念される（例えば、特許文献1参照。）。

また、特再平11-818108号公報には、低温成形の可能なポリオレフィン樹脂核剤として、ジベンジリデンソルビトール類（ジアセタール類）に、中性ないし弱酸性の一価有機酸等のバインダーが、粒状ないし粉末状ジベンジリデンソルビトール類の粒子の表面及び内部に均一に分布している組成物が示されている（例えば、特許文献2参照。）。

しかしながら、この方法では、ポリオレフィン樹脂の核剤として使用する場合  
には、ジベンジリデンソルビトール類の繊維状結晶を、有機溶媒等を用いて膨潤させ、バインダーが均一に分散している組成物を事前に作製した後に、ポリオレフィン樹脂に添加しなければならず、経済性に優れた方法であるとは言いがたい  
。

特許第3343754号明細書には、ジベンジリデンー多価アルコール誘導体に脂肪族カルボン酸アミド及び／又は芳香族カルボン酸アミドを混和或いは被覆することにより、該ジベンジリデンー多価アルコール誘導体の融点を低下させ、低温でのポリオレフィン樹脂加工時においても未溶解の該ジベンジリデンー多価アルコール誘導体に起因すると考えられる白点の発生を抑制することを目的とした透明化剤組成物が開示されている（例えば、特許文献3参照。）。

しかしながら、この透明化剤組成物をポリオレフィン樹脂の核剤として使用する  
場合、該脂肪族カルボン酸アミド及び／又は芳香族カルボン酸アミドをエチルアルコール等の溶媒に溶解し、該ジベンジリデンー多価アルコール誘導体と混和或いは被覆した後、用いた溶媒を除去する必要があるため、経済性に優れた方法

とは言いがたかった。

また、脂肪族カルボン酸アミドは、ポリオレフィン樹脂加工時の滑剤としても使用されることもある滑剤効果を有する化合物であるため、加工時の滑性が強くなりすぎる等の問題もあった。

透明性に優れたポリオレフィン系樹脂組成物を得る方法において、経済性に優れ、製造も容易な方法であって、低温度での成形加工においてもジアセタール類の不溶解部分と考えられる白点がほとんど生じない、透明性に優れたポリオレフィン系樹脂組成物が求められているのが現状である。

#### 【0003】

##### 【特許文献1】

特開平6-145431号公報

##### 【特許文献2】

特再平11-818108号公報

##### 【特許文献3】

特許第3343754号明細書

##### 【特許文献4】

特許第1517238号明細書

##### 【非特許文献1】

ジャーナル・オブ・ケミカル・ソサエティ (Journal of Chemical Society)、第110-112頁 (1948年)

#### 【0004】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明が解決しようとする課題は、透明性に優れたポリオレフィン系樹脂組成物を得る方法において、経済性に優れ、製造も容易な方法であって、低温度での成形加工においても本来のジアセタール類による透明性を損なうことなく、ジアセタール類の不溶解部分と考えられる白点がほとんど生じないポリオレフィン系樹脂組成物を提供することにある。

#### 【0005】

##### 【課題を解決するための手段】

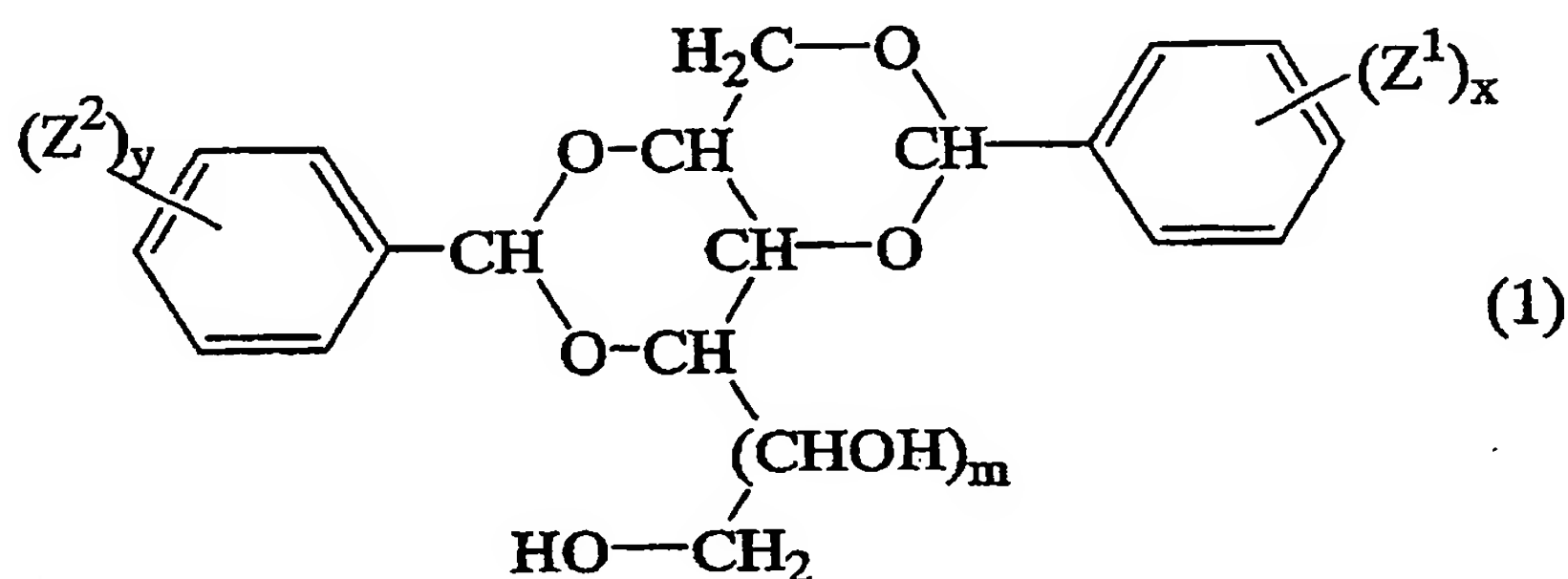
本発明者らは、上記問題を解決するため鋭意検討を重ねた結果、ポリオレフィン系樹脂の透明化剤として、ジアセタール類を使用する際に、スルホンアミド化合物を併用することにより、ジアセタール類の不溶解部分と考えられる白点を大幅に減少させることができることを見出し、本発明を完成するに至った。

# 【0006】

すなわち、本発明は、

(1) 一般式 (1) で表されるジアセタール類

## 【化1】



(式中、 $Z^1$  及び  $Z^2$  は、同一又は異なって、水素原子、ハロゲン原子、カルボキシル基、炭素数 1～8 のアルキル基、炭素数 1～3 のアルコキシ基、ニトロ基及びアミド基からなる群より選択される少なくとも一種の原子又は 1 価の有機基を示す。 $x$  及び  $y$  は、1～5 を表し、 $m$  は、0 又は 1 を表す。)、及び一般式 (2) で表されるスルホンアミド化合物

## 【化2】



( $X$  によって示される基は、直接結合、 $-O-$  基又は  $-NH-$  基を示し、 $n$  は 1 又は 2 を示し、 $R^1$  によって示される基は、炭素数 1～18 のアルキル基、炭素数 7～9 のフェニルアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、炭素数 1～4 のアルキル基で置換された炭素数 5～8 のシクロアルキル基、フェニル基、炭素数 1～9 のアルキル基で置換されたフェニル基を示し、 $R^2$  によって示される基は、 $n$  が 1 の場合には、水素原子、炭素数 1～18 のアルキル基、炭素数 7～

9 のフェニルアルキル基、炭素数 5 ～ 8 のシクロアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基で置換された炭素数 5 ～ 8 のシクロアルキル基、フェニル基、炭素数 1 ～ 9 のアルキル基で置換されたフェニル基、 $n$  が 2 の場合には、炭素数 2 ～ 18 のアルキレン基、炭素数 7 ～ 9 のフェニルアルキレン基、炭素数 5 ～ 8 のシクロアルキレン基、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基で置換された炭素数 5 ～ 8 のシクロアルキレン基、フェニレン基、炭素数 1 ～ 9 のアルキル基で置換されたフェニレン基を示し、 $R^1$  と  $R^2$  が芳香環のいずれかの位置と結合し環を形成していてもよい。) から選ばれる少なくとも一種を含有することを特徴とするジアセタール組成物、

(2) 一般式 (2) で表されるスルホンアミド化合物の配合量が、ジアセタール組成物 100 重量部に対して、0.4 ～ 20 重量部である (1) のジアセタール組成物、

(3) (1) のジアセタール組成物を含有することを特徴とするポリオレフィン系樹脂組成物、

(4) (2) のジアセタール組成物を含有することを特徴とするポリオレフィン系樹脂組成物、

(5) ポリオレフィン系樹脂 100 重量部に対して、(1) のジアセタール組成物を 0.05 ～ 5 重量部含有することを特徴とするポリオレフィン系樹脂組成物、である。

#### 【0007】

##### 【発明の実施の形態】

本発明のポリオレフィン系樹脂としては、 $\alpha$ -オレフィンのホモポリマー及びコポリマーが挙げられ、具体的には、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン-1、1,2-ポリブタジエン及びエチレン-酢酸ビニルコポリマー、エチレン-塩化ビニルコポリマー、エチレン-プロピレンコポリマー等が挙げられる。

#### 【0008】

本発明のジアセタールとしては、1,3:2,4-ジベンジリデンソルビトール、1,3:2,4-ジ(p-メチルベンジリデン)ソルビトール、1,3:2,4-ジ(p-エチルベンジリデン)ソルビトール、1,3:2,4-ジ(p-

クロルベンジリデン) ソルビトール、1, 3 : 2, 4-ビス (2, 4-ジメチルベンジリデン) ソルビトール、1, 3 : 2, 4-ビス (3, 4-ジメチルベンジリデン) ソルビトール等の同種のベンジリデン基を有する化合物、1, 3-ベンジリデン-2, 4-p-メチルベンジリデンソルビトール、1, 3-p-メチルベンジリデン-2, 4-ベンジリデンソルビトール、1, 3-ベンジリデン-2, 4-p-エチルベンジリデンソルビトール、1, 3-p-エチルベンジリデン-2, 4-ベンジリデンソルビトール、1, 3-ベンジリデン-2, 4-p-クロルベンジリデンソルビトール、1, 3-p-クロルベンジリデン-2, 4-ベンジリデンソルビトール、1, 3-ベンジリデン-2, 4-(2, 4-ジメチルベンジリデン) ソルビトール、1, 3-(2, 4-ジメチルベンジリデン)-2, 4-ベンジリデンソルビトール、1, 3-ベンジリデン-2, 4-(3, 4-ジメチルベンジリデン) ソルビトール、1, 3-(3, 4-ジメチルベンジリデン)-2, 4-ベンジリデンソルビトール、1, 3-p-メチルベンジリデン-2, 4-p-エチルベンジリデンソルビトール、1, 3-p-エチルベンジリデン-2, 4-p-メチルベンジリデンソルビトール、1, 3-p-メチル-ベンジリデン-2, 4-p-クロルベンジリデンソルビトール、1, 3-p-クロルベンジリデン-2, 4-p-メチルベンジリデンソルビトール等の異種のベンジリデン基を有する化合物若しくは1, 3 : 2, 4-ジベンジリデンキシリトール、1, 3 : 2, 4-ジ (p-メチルベンジリデン) キシリトール、1, 3 : 2, 4-ジ (p-エチルベンジリデン) キシリトール、1, 3 : 2, 4-ジ (p-クロルベンジリデン) キシリトール、1, 3 : 2, 4-ビス (2, 4-ジメチルベンジリデン) キシリトール、1, 3 : 2, 4-ビス (3, 4-ジメチルベンジリデン) キシリトール等の同種のベンジリデン基を有する化合物、1, 3-ベンジリデン-2, 4-p-メチルベンジリデンキシリトール、1, 3-p-メチルベンジリデン-2, 4-ベンジリデンキシリトール、1, 3-ベンジリデン-2, 4-p-エチルベンジリデンキシリトール、1, 3-p-エチルベンジリデン-2, 4-ベンジリデンキシリトール、1, 3-ベンジリデン-2, 4-p-クロルベンジリデンキシリトール、1, 3-p-クロルベンジリデン-2, 4-ベンジリデンキシリトール、1, 3-ベンジリデン-2, 4-(2, 4-ジメチルベ



ンジリデン) キシリトール、1, 3-(2, 4-ジメチルベンジリデン)-2, 4-ベンジリデンキシリトール、1, 3-ベンジリデン-2, 4-(3, 4-ジメチルベンジリデン) キシリトール、1, 3-(3, 4-ジメチルベンジリデン)-2, 4-ベンジリデンキシリトール、1, 3-p-メチルベンジリデン-2, 4-p-エチルベンジリデンキシリトール、1, 3-p-エチルベンジリデン-2, 4-p-メチルベンジリデンキシリトール、1, 3-p-メチル-ベンジリデン-2, 4-p-クロルベンジリデンキシリトール、1, 3-p-クロルベンジリデン-2, 4-p-メチルベンジリデンキシリトール等の異種のベンジリデン基を有する化合物等が例示され、特に好ましくは、1, 3:2, 4-ジベンジリデンソルビトール、1, 3:2, 4-ジ(p-メチルベンジリデン)ソルビトール、1, 3:2, 4-ジ(p-エチルベンジリデン)ソルビトール、1, 3:2, 4-ビス(3, 4-ジメチルベンジリデン)ソルビトール、1, 3:2, 4-ジベンジリデンキシリトール等が挙げられる。これらはそれぞれ単独又は二種以上を適宜組み合わせ使用される。

また、本発明におけるジアセタール組成物には、ジアセタールの他にモノアセタール、トリアセタール等も含んでいてもよく、これらはそれぞれ単独又は二種以上を含んでいてもよい。

#### 【0009】

本発明におけるジアセタールの使用量は、ポリオレフィン系樹脂100重量部に対して、0.05～5重量部が好ましく、特に0.1～1重量部が好ましい。0.05重量部より少なければ、透明性改良効果がほとんど見られず、5重量部よりも多いと、効果が頭打ちになるだけでなく、製品も高価になり、好ましくない。また、製品が着色する恐れもある。

#### 【0010】

一般式(2)で表される本発明の化合物中、Xによって示される基は、直接結合、-O-基又は-NH-基を示し、nは1又は2を示し、R<sup>1</sup>によって示される基は、炭素数1～18のアルキル基、炭素数7～9のフェニルアルキル基、炭素数5～8のシクロアルキル基、炭素数1～4のアルキル基で置換された炭素数5～8のシクロアルキル基、フェニル基、炭素数1～9のアルキル基で置換され

たフェニル基を示し、 $R^2$ によって示される基は、 $n$ が1の場合には、水素原子、炭素数1～18のアルキル基、炭素数7～9のフェニルアルキル基、炭素数5～8のシクロアルキル基、炭素数1～4のアルキル基で置換された炭素数5～8のシクロアルキル基、フェニル基、炭素数1～9のアルキル基で置換されたフェニル基、 $n$ が2の場合には、炭素数2～18のアルキレン基、炭素数7～9のフェニルアルキレン基、炭素数5～8のシクロアルキレン基、炭素数1～4のアルキル基で置換された炭素数5～8のシクロアルキレン基、フェニレン基、炭素数1～9のアルキル基で置換されたフェニレン基を示し、 $R^1$ と $R^2$ が芳香環のいずれかの位置と結合し環を形成していてもよい。

一般式(2)により表される化合物の具体例としては、

N-アセチル-4-メチルベンゼンスルホンアミド、

N-ベンゾイル-4-メチルベンゼンスルホンアミド、

N-フェニルアセチル-4-メチルベンゼンスルホンアミド、

N-ステアロイル-4-メチルベンゼンスルホンアミド、

N-ベンゾイル-メタンスルホンアミド、

o-ベンゾイック スルフィミド (サッカリン)、

N-エトキシカルボニル-4-メチルベンゼンスルホンアミド、

N-フェノキシカルボニル-ベンゼンスルホンアミド、

N-フェニルエトキシカルボニル-メタンスルホンアミド、

N-ブトキシカルボニル-ベンゼンスルホンアミド、

N-プロピルアミノカルボニル-ベンゼンスルホンアミド、

N-フェニルアミノカルボニル-4-メチルベンゼンスルホンアミド、

N-ステアリルアミノカルボニル-4-メチルベンゼンスルホンアミド、

N-ラウリルアミノカルボニル-メタンスルホンアミド、

1, 4-ビス (4-メチルベンゼンスルホニルアミノカルボニル) ブタン、

1, 4-ビス (ベンゼンスルホニルアミノカルボニル) ベンゼン

1, 2-ビス (ベンゼンスルホニルアミノカルボニルオキシ) エタン、

1, 3-ビス (メタンスルホニルアミノカルボニルオキシメチル) ベンゼン、

1, 6-ビス (ベンゼンスルホニルアミノカルボニルアミノ) ヘキサン等が挙



げられ、*o*-ベンゾイック スルフィミド（以下、サッカリンともいう。）が特に好ましい。これらは、それぞれ単独又は二種以上を適宜組み合わせて使用される。

#### 【0011】

本発明に用いられる一般式（2）により表される化合物は、「ジャーナル・オブ・ケミカル・ソサエティ（*Journal of Chemical Society*）、第110-112頁（1948年）」に記載の方法に準じて合成できる（例えば、非特許文献1参照。）。

また、サッカリンは、試薬として販売されているので、容易に入手できる。

#### 【0012】

本発明における一般式（2）により表される化合物の使用量は、ポリオレフィン系樹脂100重量部に対して、0.0002～1重量部が好ましく、特に0.001～0.5重量部が好ましい。0.0002重量部より少なければ、白点の防止効果がほとんど見られず、1重量部よりも多いと、効果が頭打ちになるだけでなく、製品も高価になり、好ましくない。また、製品が着色する恐れもある。

#### 【0013】

一般式（2）で表される化合物から選ばれる少なくとも一種の化合物を含むジアセタール組成物を得る方法としては、一般式（2）で表される化合物の粉末とジアセタールの粉末を混和すればよい。緊密に混和する場合には、一般式（2）で表される化合物を、例えば、メタノール、エタノールのようなアルコールの如き適当な溶媒に溶解し、該ジアセタールの粉末又は該ジアセタールの適当な溶媒又は分散液と混合し、次いで溶媒又は液体媒体を蒸発又は適当な手段で分離すればよい。

特許第1517238号明細書に開示されている方法のように、ジアセタールの粉末表面に一般式（2）で表される化合物を被覆してもよい（例えば、特許文献4参照。）。

更に特再平11-818108号公報に開示されている方法のように、ジアセタールの粒子中に一般式（2）で表される化合物を均一に分散させてもよい（例えば、特許文献2参照。）。

## 【0014】

本発明のジアセタル組成物は、ジアセタル100重量部に対して、一般式(2)で表される化合物を0.4～20重量部の割合で混合される必要がある。好ましくは、一般式(2)で表される化合物を0.5～10重量部である。0.4重量部以下の場合には、融点降下の効果が小さく、20重量部よりも多いと、融点降下の効果が頭打ちとなるだけでなく、製品も高価になり、好ましくない。

## 【0015】

本発明におけるポリオレフィン系樹脂に対するジアセタル組成物の使用量は、ポリオレフィン系樹脂100重量部に対して、ジアセタル組成物0.05～5重量部が好ましく、特に0.1～1重量部が好ましい。0.05重量部より少なければ、透明性改良効果がほとんど見られず、5重量部よりも多いと、効果が頭打ちになるだけでなく、製品も高価になり、好ましくない。また、製品が着色する恐れもある。

## 【0016】

本発明のポリオレフィン系樹脂組成物を調製するには、一般式(1)で表されるジアセタル類と一般式(2)で表される化合物をそれぞれ所定量秤量し、ポリオレフィン系樹脂に混合するか、一般式(1)で表されるジアセタル類と一般式(2)で表される化合物を混合したジアセタル組成物を所定量秤量し、ポリオレフィン系樹脂に混合すればよい。

更に必要に応じて、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤或いはその他の添加剤をポリオレフィン系樹脂に混合してもよく、混合した後に混練してもよく、押し出し等の工程を経ることもできる。

このようにして得たポリオレフィン系樹脂組成物は、例えば、射出成形法、押出成形法、ブロー成形法等によって、白点が非常に少ない、透明性に優れた製品に成形することができる。

## 【0017】

## 【実施例】

以下、合成例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されないことは言うまでもない。

## 【0018】

[合成例1] N-アセチル-4-メチルベンゼンスルホンアミド  
(化合物1)

攪拌装置を備えた200mLの四つ口フラスコにp-トルエンスルホンアミド17.1gとピリジン15.8gを仕込み、攪拌して結晶を溶解させた。この溶液に塩化アセチル7.9gとトルエン20mLを混合した溶液を滴下し、滴下終了後、80℃で6時間、反応した。反応終了後、トルエンと水を加え、水洗・分液を行い、トルエン層を濃縮した。残渣を水から再結晶すると目的の化合物が白色結晶で得られた(以下、「化合物1」ともいう。)。融点140℃。

## 【0019】

合成例1と同様な方法にて、表1に示す一般式(2)で表される化合物が合成できる(化合物2~5)。

## 【0020】

表1

	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	融点
化合物1	メチルフェニル	メチル	140℃
化合物2	メチルフェニル	フェニル	149℃
化合物3	メチルフェニル	ベンジル	151℃
化合物4	メチルフェニル	C <sub>17</sub> H <sub>35</sub>	98℃
化合物5	メチル	フェニル	154℃

## 【0021】

## [実施例]

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されないことは言うまでもない。

実施例で使用する各略号の意味は、次のとおりである。

Y-MS: ジ(p-メチルベンジリデン)ソルビトール

EC-1: ジベンジリデンソルビトール

NC-4: ジ(p-エチルベンジリデン)ソルビトール

3988: ジ(3,4-ジメチルベンジリデン)ソルビトール

## 【0022】

## &lt;融点&gt;

島津製作所製の示差走査熱量計「DSC-60」を用いて、窒素気流下、10℃/分の速度で昇温し、ジアセタール由来の吸熱ピーク温度を融点とした。試料を約5mg採取し、標準サンプルとしてアルミナ粉末を使用した。

## [ヘーズ値（透明性）]

日本電色工業株式会社製ヘーズメーター（NDH2000）を用い、JISK7105に準じて測定した。得られた数値が小さいほど透明性に優れる。

## &lt;白点（分散性）&gt;

試験片5枚中の白点を目視にて観察し、下記の3段階で評価した。

白点が少ないほど実用性に優れることを意味する。

◎：優れている

○：良い

×：不可

## 【0023】

## 実施例1

ランダムポリプロピレン（MFR=7.0g/10min）100重量部に対しY-MS 0.2重量部、サッカリン0.006重量部及び流動パラフィン0.1重量部を配合してターブラーシェーカーミキサーにて混合した。

次に230℃にて2軸押出し機で溶融混練し、ストランドを水冷後切断しペレットを得た。

得られたペレットを成形温度220℃、金型温度40℃にて射出成形し、厚み2mmの試験片を作成し、該試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した。得られた結果を表2に示す。

## 【0024】

## 実施例2

実施例1のサッカリンに代えて、合成例1の化合物（化合物1）0.006重量部を配合した以外は実施例1と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表2に示す。

## 【0025】

## 実施例 3

実施例 1 のサッカリンに代えて、合成例 2 の化合物（化合物 2）0.02 重量部を配合した以外は実施例 1 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

## 【0026】

## 実施例 4

実施例 1 のサッカリンに代えて、合成例 3 の化合物（化合物 3）0.006 重量部を配合した以外は実施例 1 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

## 【0027】

## 実施例 5

実施例 1 のサッカリンに代えて、合成例 5 の化合物（化合物 5）0.006 重量部を配合した以外は実施例 1 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

## 【0028】

## 比較例 1

実施例 1 のサッカリン 0.006 重量部を配合しなかったこと以外は、実施例 1 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

## 【0029】

## 実施例 6

成形温度を 250℃とした以外は実施例 1 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

## 【0030】

## 実施例 7

成形温度を 250℃とした以外は実施例 2 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

## 【0031】

## 実施例 8

成形温度を 250℃とした以外は実施例 3 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

【0032】

## 実施例 9

成形温度を 250℃とした以外は実施例 4 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

【0033】

## 実施例 10

実施例 1 のサッカリンに代えて、合成例 4 の化合物（化合物 4）0.02 重量部を配合し、成形温度を 250℃とした以外は実施例 1 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

【0034】

## 実施例 11

実施例 1 のサッカリンに代えて、合成例 5 の化合物（化合物 5）0.02 重量部を配合し、成形温度を 250℃とした以外は実施例 1 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

【0035】

## 比較例 2

成形温度を 250℃とした以外は比較例 1 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 2 に示す。

【0036】



表 2

	サンプル名	ジアセタールに対する配合量	成形温度	ヘーズ値 (%)	白点
実施例 1	サッカリン	3 部	2 2 0 ℃	2 7	◎
実施例 2	化合物 1	3 部	2 2 0 ℃	2 8	○
実施例 3	化合物 2	1 0 部	2 2 0 ℃	2 8	○
実施例 4	化合物 3	3 部	2 2 0 ℃	2 8	○
実施例 5	化合物 5	3 部	2 2 0 ℃	2 8	○
比較例 1	—	—	2 2 0 ℃	2 9	×
実施例 6	サッカリン	3 部	2 5 0 ℃	2 9	◎
実施例 7	化合物 1	3 部	2 5 0 ℃	3 0	○
実施例 8	化合物 2	1 0 部	2 5 0 ℃	3 0	◎
実施例 9	化合物 3	3 部	2 5 0 ℃	3 0	◎
実施例 1 0	化合物 4	1 0 部	2 5 0 ℃	3 0	○
実施例 1 1	化合物 5	1 0 部	2 5 0 ℃	3 0	◎
比較例 2	—	—	2 5 0 ℃	3 0	×

## 【0037】

## 実施例 1 2

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール 100 重量部とサッカリン 1 重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表 3 に示す。

## 【0038】

## 実施例 1 3

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール 100 重量部とサッカリン 3 重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表

3に示す。

【0039】

実施例 14

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール100重量部とサッカリン5重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表3に示す。

【0040】

実施例 15

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール100重量部とサッカリン10重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表3に示す。

【0041】

実施例 16

攪拌装置を備えている反応容器にサッカリン1重量部とメタノール120重量部を加え、攪拌して溶解させた。この溶液にジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール100重量部を加え、十分に攪拌・混合した後、メタノールを減圧留去し、得られた混合物を十分に乾燥させた。得られた混合物の融点の結果を表3に示す。

【0042】

実施例 17

攪拌装置を備えている反応容器にサッカリン3重量部とメタノール120重量部を加え、攪拌して溶解させた。この溶液にジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール100重量部を加え、十分に攪拌・混合した後、メタノールを減圧留去し、得られた混合物を十分に乾燥させた。得られた混合物の融点の結果を表3に示す。

【0043】

実施例 18

攪拌装置を備えている反応容器にサッカリン5重量部とメタノール120重量部を加え、攪拌して溶解させた。この溶液にジ（p-メチルベンジリデン）ソル

ビトール100重量部を加え、十分に攪拌・混合した後、メタノールを減圧留去し、得られた混合物を十分に乾燥させた。得られた混合物の融点の結果を表3に示す。

【0044】

比較例3

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール100重量部とサッカリン0.1重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表3に示す。

【0042】

比較例4

サッカリン未添加のジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトールの融点の結果を表3に示す。

【0043】

表3

	ジアセタール	サッカリン の配合量	混合方法	融点
実施例12	Y-M S	1部	乾式	208℃
実施例13	Y-M S	3部	乾式	204℃
実施例14	Y-M S	5部	乾式	195℃
実施例15	Y-M S	10部	乾式	198℃
実施例16	Y-M S	1部	湿式	219℃
実施例17	Y-M S	3部	湿式	200℃
実施例18	Y-M S	5部	湿式	196℃
比較例3	Y-M S	0.1部	乾式	265℃
比較例4	Y-M S	未添加	—	265℃

【0044】

実施例19

ジベンジリデンソルビトール100重量部とサッカリン3重量部をオスターブ

レンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表4に示す。

【0045】

比較例 5

サッカリン未添加のジベンジリデンソルビトールの融点の結果を表4に示す。

【0046】

実施例 20

ジ(p-エチルベンジリデン)ソルビトール100重量部とサッカリン3重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表4に示す。

【0047】

比較例 6

サッカリン未添加のジ(p-エチルベンジリデン)ソルビトールの融点の結果を表4に示す。

【0048】

実施例 21

ジ(3,4-ジメチルベンジリデン)ソルビトール100重量部とサッカリン3重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表4に示す。

【0049】

比較例 7

サッカリン未添加のジ(3,4-ジメチルベンジリデン)ソルビトールの融点の結果を表4に示す。

【0050】

表 4

	ジアセタール	サッカリン の配合量	混合方法	融点
実施例 19	EC-1	3部	乾式	189℃
比較例 5	EC-1	未添加	—	227℃
実施例 20	NC-4	3部	乾式	198℃
比較例 6	NC-4	未添加	—	252℃
実施例 21	3988	3部	乾式	209℃
比較例 7	3988	未添加	—	283℃

## 【0051】

## 実施例 22

ジ(p-メチルベンジリデン) ソルビトール 100重量部と合成例1の化合物 10重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表5に示す。

## 【0052】

## 実施例 23

ジ(p-メチルベンジリデン) ソルビトール 100重量部と合成例2の化合物 3重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表5に示す。

## 【0053】

## 実施例 24

ジ(p-メチルベンジリデン) ソルビトール 100重量部と合成例2の化合物 10重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表5に示す。

## 【0054】

## 実施例 25

ジ(p-メチルベンジリデン) ソルビトール 100重量部と合成例3の化合物 3重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果

果を表 5 に示す。

【0055】

実施例 26

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール 100 重量部と合成例 3 の化合物 10 重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表 5 に示す。

【0056】

実施例 27

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール 100 重量部と合成例 4 の化合物 10 重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表 5 に示す。

【0057】

実施例 28

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール 100 重量部と合成例 5 の化合物 3 重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表 5 に示す。

【0058】

実施例 29

ジ（p-メチルベンジリデン）ソルビトール 100 重量部と合成例 5 の化合物 10 重量部をオスターブレンダーにて十分に混合した。得られた混合物の融点の結果を表 5 に示す。

【0059】

表 5

	ジアセタール	一般式（2） の配合量	混合方法	融点
実施例 22	Y-M S	10 部	乾式	242℃
実施例 23	Y-M S	3 部	乾式	241℃



実施例 2 4	Y - M S	1 0 部	乾式	2 2 8 °C
実施例 2 5	Y - M S	3 部	乾式	2 4 9 °C
実施例 2 6	Y - M S	1 0 部	乾式	2 3 7 °C
実施例 2 7	Y - M S	1 0 部	乾式	2 4 7 °C
実施例 2 8	Y - M S	3 部	乾式	2 4 4 °C
実施例 2 9	Y - M S	1 0 部	乾式	2 2 4 °C

## 【0060】

## 実施例 3 0

ランダムポリプロピレン (MFR = 7.0 g / 10 min) 100 重量部に対し、実施例 12 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部及び流動パラフィン 0.1 重量部を配合してターブラーシェーカーミキサーにて混合した。

次に 230 °C にて 2 軸押出し機で熔融混練し、ストランドを水冷後切断しペレットを得た。

得られたペレットを成形温度 220 °C、金型温度 40 °C にて射出成形し、厚み 2 mm の試験片を作成し、該試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した。得られた結果を表 6 に示す。

## 【0061】

## 実施例 3 1

実施例 12 の混合物の代えて、実施例 13 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合した以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

## 【0062】

## 実施例 3 2

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 14 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合した以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

## 【0063】

## 実施例 3 3

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 15 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合した以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

【0064】

実施例 34

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 24 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合した以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

【0065】

実施例 35

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 26 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合した以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

【0066】

実施例 36

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 29 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合した以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

【0067】

実施例 37

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 15 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合し、成形温度を 250℃とした以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

【0068】

実施例 38

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 22 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合し、成形温度を 250℃とした以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結

果を表 6 に示す。

【0069】

実施例 39

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 23 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合し、成形温度を 250℃とした以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

【0070】

実施例 40

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 26 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合し、成形温度を 250℃とした以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

【0071】

実施例 41

実施例 12 の混合物に代えて、実施例 28 の混合物をジアセタールの純分換算で 0.2 重量部配合し、成形温度を 250℃とした以外は実施例 30 と同様に試験片を作成した。得られた試験片のヘーズ値の測定及び白点について評価した結果を表 6 に示す。

【0072】

表 6

	サンプル名	ジアセ タール に対す る配合 量	成形温度	ヘーズ値 (%)	白 点
実施例 3 0	サッカリン	1 部	2 2 0 ℃	2 9	○
実施例 3 1	サッカリン	3 部	2 2 0 ℃	2 9	◎
実施例 3 2	サッカリン	5 部	2 2 0 ℃	2 9	◎
実施例 3 3	サッカリン	1 0 部	2 2 0 ℃	2 8	◎
実施例 3 4	合成例 2	1 0 部	2 2 0 ℃	2 7	○
実施例 3 5	合成例 3	1 0 部	2 2 0 ℃	2 9	○
実施例 3 6	合成例 5	1 0 部	2 2 0 ℃	2 7	○
比較例 1	—	—	2 2 0 ℃	2 9	×
実施例 3 7	サッカリン	1 0 部	2 5 0 ℃	2 9	◎
実施例 3 8	合成例 1	1 0 部	2 5 0 ℃	2 9	◎
実施例 3 9	合成例 2	3 部	2 5 0 ℃	2 9	◎
実施例 4 0	合成例 3	1 0 部	2 5 0 ℃	3 1	○
実施例 4 1	合成例 5	3 部	2 5 0 ℃	3 0	○
比較例 2	—	—	2 5 0 ℃	3 1	×

【0073】

## 【発明の効果】

透明性に優れたポリオレフィン系樹脂組成物を得る方法において、一般式（1）で表されるアセタール類に、一般式（2）で表されるスルホンアミド化合物を併用することにより、低温度での成形加工においても本来のジアセタール類による透明性を損なうことなく、ジアセタール類の不溶解部分と考えられる白点がほとんど生じない透明なポリオレフィン系樹脂組成物を得ることができた。

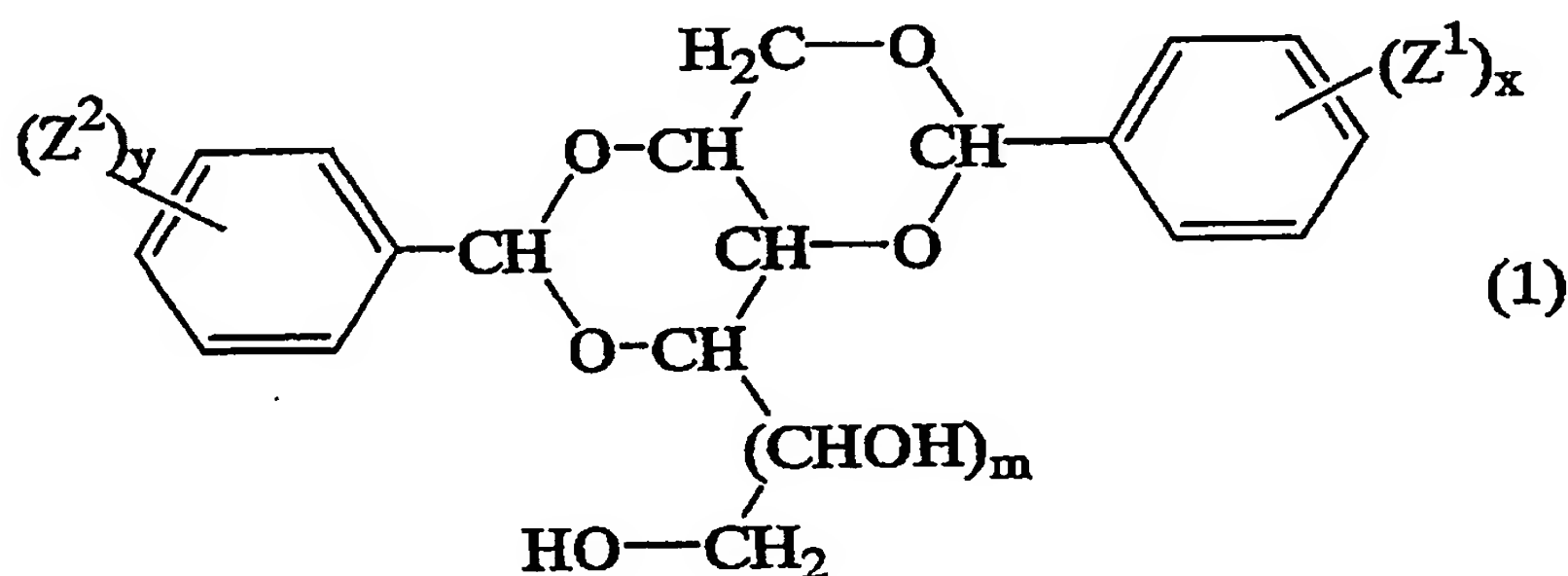
## 【書類名】 要約書

## 【要約】

【課題】 本発明が解決しようとする課題は、透明性に優れたポリオレフィン系樹脂組成物を得る方法において、経済性に優れ、製造も容易な方法であって、低温度での成形加工においても本来のジアセタール類による透明性を損なうことなく、ジアセタール類の不溶解部分と考えられる白点がほとんど生じないポリオレフィン系樹脂組成物を提供することにある。

【解決手段】 本発明者らは、上記問題を解決するため鋭意検討を重ねた結果、ポリオレフィン系樹脂の透明化剤として、ジアセタール類を使用する際に、一般式(2)で示されるスルホンアミド化合物を特定量併用することにより、ジアセタール類の不溶解部分と考えられる白点を大幅に減少させることができることを見出し、本発明を完成するに至った。

## 【化1】



## 【化2】



## 【選択図】 なし

特願 2002-369016

出願人履歴情報

識別番号

[396020464]

1. 変更年月日

2002年10月 8日

[変更理由]

名称変更

住 所

大阪府大阪市中央区平野町二丁目4番9号

氏 名

株式会社エーピーアイ コーポレーション



【書類名】 特許願

【整理番号】 AP3187

【提出日】 平成14年11月15日

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

【住所又は居所】 福岡県築上郡吉富町大字小祝 9 5 5 番地 株式会社エー  
ピーアイ コーポレーション内

【氏名】 堀江 松一

【発明者】

【住所又は居所】 福岡県築上郡吉富町大字小祝 9 5 5 番地 株式会社エー  
ピーアイ コーポレーション内

【氏名】 山中 猛

【特許出願人】

【識別番号】 396020464

【氏名又は名称】 株式会社エーピーアイ コーポレーション

【代理人】

【識別番号】 100066304

【氏名又は名称】 高宮城 勝

【電話番号】 06-6201-2411

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 047821

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9606266

【その他】

予納台帳の名義人は、吉富ファインケミカル株式会社で  
したが、平成14年10月1日付けでその名称を株式会  
社エーピーアイコーポレーションに変更しましたので、

平成14年10月8日付けで名称変更届を提出しております。

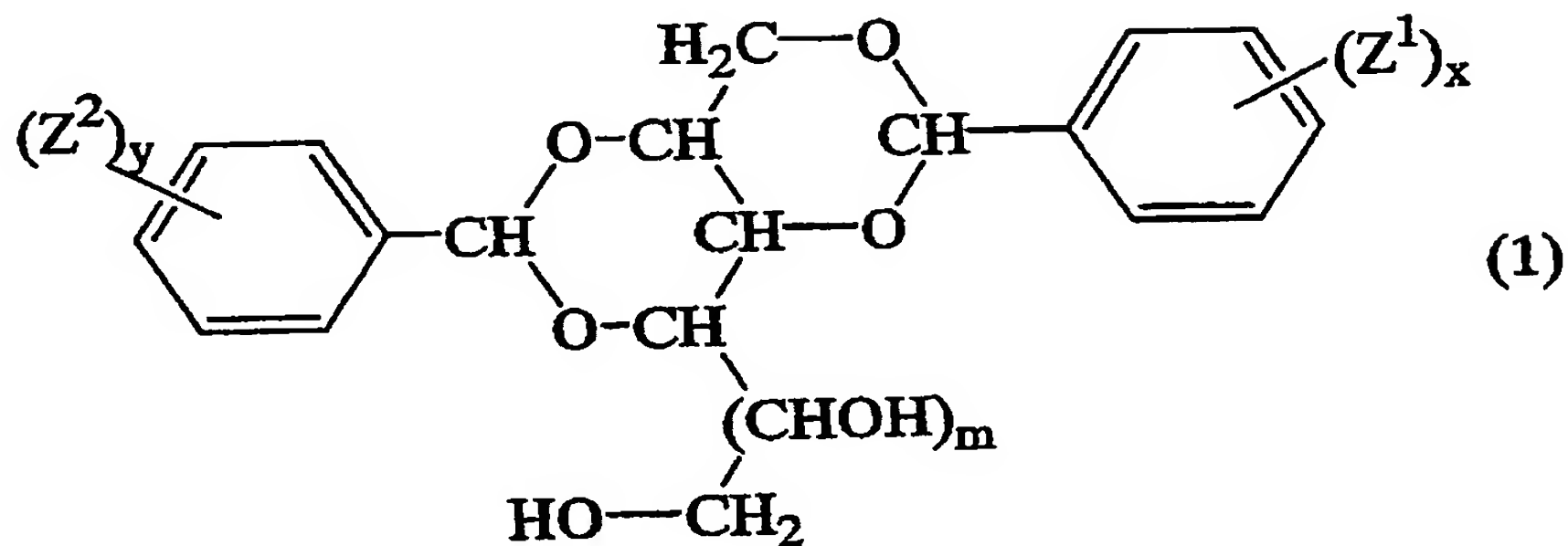
【書類名】 明細書

【発明の名称】 ジアセタール組成物を含むポリオレフィン系樹脂組成物

【特許請求の範囲】

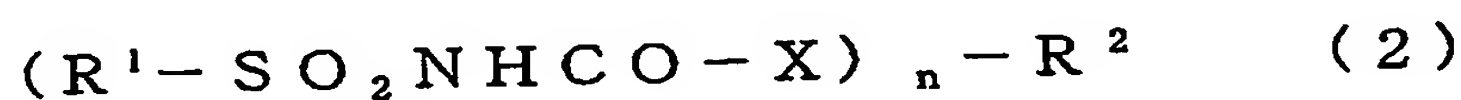
【請求項 1】 一般式 (1) で表されるジアセタール類

【化 1】



(式中、Z<sup>1</sup> 及び Z<sup>2</sup> は、同一又は異なって、水素原子、ハロゲン原子、カルボキシル基、炭素数 1～8 のアルキル基、炭素数 1～3 のアルコキシ基、ニトロ基及びアミド基からなる群より選択される少なくとも一種の原子又は 1 価の有機基を示す。x 及び y は、1～5 を表し、m は、0 又は 1 を表す。)、及び一般式 (2) で表されるスルホンアミド化合物

【化 2】



(X によって示される基は、直接結合、-O-基又は-NH-基を示し、n は 1 又は 2 を示し、R<sup>1</sup> によって示される基は、炭素数 1～18 のアルキル基、炭素数 7～9 のフェニルアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、炭素数 1～4 のアルキル基で置換された炭素数 5～8 のシクロアルキル基、フェニル基、炭素数 1～9 のアルキル基で置換されたフェニル基を示し、R<sup>2</sup> によって示される基は、n が 1 の場合には、水素原子、炭素数 1～18 のアルキル基、炭素数 7～9 のフェニルアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、炭素数 1～4 のアルキル基で置換された炭素数 5～8 のシクロアルキル基、フェニル基、炭素数 1～9 のアルキル基で置換されたフェニル基、n が 2 の場合には、炭素数 2～18

10/534 439  
Rec'd PCT/PTO 10 MAY 2005  
PCT/JPC3/13208 #2

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

15.10.03 RECEIVED  
04 DEC 2003  
WIPO PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出願年月日 2002年11月15日  
Date of Application:

出願番号 特願2002-369016  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP 2002-369016]

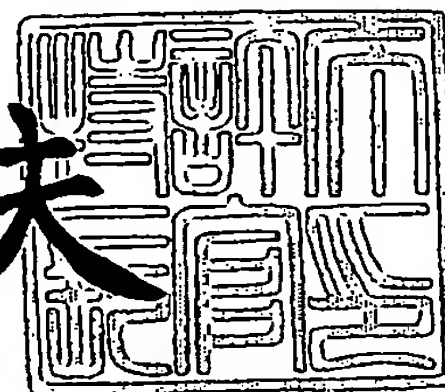
出願人 株式会社エーピーアイ コーポレーション  
Applicant(s):

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年11月21日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3096378